#### IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s):

NOUGIER, et al.

Serial No.:

Not assigned

Filed:

March 5, 2002

Title:

REACTOR DEVICE HAVING AN ENCLOSURE MADE OF

REFRACTORY MATERIAL AND A CONTAINMENT ENVELOPE FOR BRINGING ABOUT CHEMICAL REACTIONS REQUIRING HEAT EXCHANGE

Group:

Not assigned

#### LETTER CLAIMING RIGHT OF PRIORITY

Honorable Commissioner of Patents and Trademarks Washington, D.C. 20231

March 5, 2002

Sir:

Under the provisions of 35 USC 119 and 37 CFR 1.55, the applicant(s) hereby claim(s) the right of priority based on French Application No.(s) 0103191 filed March 5, 2001.

A certified copy of said French Application is attached.

Respectfully submitted,

ANTONELLI TERRY, STOUT & KRAUS, LLP

Alan E. Schiavelli

Registration No. 32,087

AES/amr Attachment (703) 312-6600





ÍNDI





# BREVET D'INVENTION

### **CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION**

## **COPIE OFFICIELLE**

Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

Fait à Paris, le 18 JAN. 2002

Pour le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle Le Chef du Département des brevets

Martine PLANCHE

INSTITUT
NATIONAL DE
LA PROPRIETE
INDUSTRIELLE

SIEGE
26 bis, rue de Saint Petersbourg
75800 PARIS cedex 08
Téléphone : 33 (1) 53 04 53 04
Télécopie : 33 (1) 42 93 59 30
www.inpi.fr

	•		
			oko

Ter depot



÷





Code de la propriété intellectuelle - Livre VI

26 bis, rue de Saint Pétersbourg

REQUÊTE EN DÉLIVRANCE 1/2

	0 Paris Cedex 08 hone : 01 53 04 53	04 Télécopie : 01 42 94 86 54	Importante Remp	lir impérativement la 2	ème pa	ge.	,			
		**	Control of the Contro	Cet imprimé est à remp	olir lisible	ement a	à l'en	icre noi	re	DB 540 W /1906
REMI DATE	ISE DES PIÈCES 🕳	5 MARS 2001		1 NOM ET ADRESS À QUI LA COR						DATAIRE
LIEU	विव			INSTITUT FRAN						•
	'ENREGISTREMENT	0103191		1 & 4 avenue de B			IKO	LE		
	ONAL ATTRIBUÉ PAR			1 & + avenue de B	013 1 100	au.				
1	DE DÉPÔT ATTRIBUE L'INPI	= - 5 MARS 2001	·	92852 Rueil-Malm	naison c	edex				
	s <b>références p</b> cultatif) AR/CL	our ce dossier N	•	<b>.</b>			نسبب نيب			þ
C	nfirmation d'u	n dépôt par télécopie [	☐ N° attribué par l'II	NPI à la télécopie		•				
2	NATURE DE	LA DEMANDE	Cochez l'une des	4 cases suivantes					<del></del>	
	Demande de l	prevet	X				-			·
	Demande de d	certificat d'utilité							<del></del>	
	Demande divis	sionnaire	П		:					
		Damanda da kumatinisiala	N°		Date	1	,	,		
		Demande de brevet initiale					<u>'</u>		l	
<u> </u>		nde de certificat d'utilité initiale	N°		Date					
		d'une demande de	L No		D. L.	1	,	,	1	
3	<del></del>	n Demande de brevet initiale NVENTION (200 caractères ou	N°	<u> </u>	Date					
4		N DE PRIORITÉ E DU BÉNÉFICE DE	Pays ou organisatio		N°			<del></del>		
	LA DATE DE	DÉPÔT D'UNE	Pays ou organisatio	n 1	N۰					
	DEMANDE A	NTÉRIEURE FRANÇAISE	Pays ou organisatio	n 1		-				
			Date//		N°	_	. ***	•••		<b>.</b>
			Silya d'au	tres priorités, coche	z la cas	e et u	CHISE ———	z rimi	prime	«Suite»
5	DEMANDEU		S'il y a d'at	itres demandeurs, co	chez la	case	et u	tilisez ———	l'impri	imé «Suite»
	Nom ou dénor	nination sociale	INSTITUT FRANC	CAIS DU PETROLE						
	Prénoms							<del>- , ,, ,, </del>		
Forme juridique		Organisme Profess	ionnel						<del></del>	
	N° SIREN		<u> </u>							
	Code APE-NAF									
	Adresse	Rue	1 & 4 avenue de Bo	ois Préau					- 4 <u>-</u>	
		Code postal et ville	92852 Rueil	-Malmaison cedex		<del></del>				
	Pays		France				-			
	Nationalité		française							
	N° de téléphor		01 47 52 60 00						· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
<u> </u>	N° de télécopi	<del></del>	01 47 52 70 03							
	Adresse électro	onique (facultatif)								

1er dépôt



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITÉ

REQUÊTE EN DÉLIVRANCE 2/2

			-		
REMISE DES PIÈCES - 5 MARS 200 DATE					
LIEU Q9					
رد	1				
N° D'ENREGISTREMENT U1U315  NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI			DB 540 W /190600		
V s r'férences pour ce dossier : (facultatif)	AR/CLN				
6 MANDATAIRE					
Nom	ELMALEH				
Prénom	Alfred				
Cabinet ou Société	INSTITUT FRANCA	AIS DU PETROLE			
N °de pouvoir permanent et/ou de lien contractuel					
Adresse	1 & 4 avenue de Bois	s Préau			
Code postal et ville	92852 Rueil-1	Malmaison cedex			
N° de téléphone (facultatif)	01 47 52 60 00		•		
N° de télécopie (facultatif)	01 47 52 70 03				
Adresse électronique (facultatif)		······································			
7 INVENTEUR (S)					
Les inventeurs sont les demandeurs	Oui  Non Dans ce c	as fournir une désigna	ation d'inventeur(s) séparée		
8 RAPPORT DE RECHERCHE	Uniquement pour u	ne demande de breve	t (y compris division et transformation)		
Établissement immou établissement o	, <del></del>				
Paiement échelonné de la redevance		versements, uniqueme	ent pour les personnes physiques		
9 RÉDUCTION DU TAUX		es personnes physique			
DES REDEVANCES		Requise pour la première fois pour cette invention (joindre un avis de non-imposition)			
		rement à ce dépôt <i>(joindon ou indiquer sa référence</i>	dre une copie de la décision d'admission ce):		
Si vous avez utilisé l'imprimé «Su indiquez le nombre de pages join					
OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire)			VISA DE LA PRÉFECTURE OU DE L'INPI		
Alfred ELMALEH, Chef du Département Brevets (N° 422-5/PP.253)			NAADA		

La loi n°78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique, aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.

La présente invention concerne un dispositif de réacteur pour la mise en œuvre de réactions chimiques nécessitant un échange de chaleur et plus particulièrement celles qui sont des réactions endothermiques.

5

Ce dispositif est plus particulièrement utilisable pour la mise en œuvre de réactions, telle que par exemple les réactions de vapocraquage, de pyrolyse des hydrocarbures, de déshydrogénation catalytique, de vaporéformage ou de craquage thermique d'hydrogène sulfuré (H<sub>2</sub>S).

10

15

Ce dispositif est particulièrement applicable pour la réalisation de réactions se déroulant sous une pression inférieure, égale ou supérieure à la pression atmosphérique, souvent égale ou supérieure à cette pression et le plus souvent supérieure à la pression atmosphérique et habituellement à une température élevée, c'est-à-dire souvent supérieure à 150 °C.

يتبييه كو

743

Le dispositif de réacteur est principalement destiné à traiter les cas de réactions se déroulant à haute température, telles que par exemple celles ayant lieu à une température d'au moins 350°C et dans un milieu potentiellement cokant où les effets catalytiques des parois métalliques doivent être évités.

25

30

On connaît selon le document US 5 554 347, une forme particulière de réalisation d'un réacteur comprenant plusieurs rangée de moyen de chauffage et/ou d'extraction de chaleur.

Selon l'enseignement de ce document, on utilise un réacteur comprenant des moyens de chauffage alimentés par un mélange de gaz combustible et de comburant gazeux qui permettent de générer la puissance nécessaire à la réaction et des parois de forme particulière qui permettent à la fois une augmentation des transferts thermiques du fait des échanges radiatif paroi-paroi et un contrôle du temps de séjour des gaz dans le réacteur.

5

10

30

On connaît également selon le brevet US 5 321 191, un réacteur utilisé pour la mise en œuvre d'un procédé de pyrolyse thermique d'hydrocarbures comprenant plusieurs rangée de moyens de chauffage électriques entourés de gaine disposés en nappes sensiblement parallèles entre elles et perpendiculaires à l'axe du réacteur de façon à définir, entre les gaines et/ou entre les gaines et des cloisons internes séparant deux nappes de gaines parallèles, des espaces ou passages pour la circulation des mélanges gazeux et/ou des effluents.

La mise en œuvre de ces technologies présentes de nombreux avantages par rapport aux technologies céramiques développées antérieurement par exemple telle que celle décrite dans le brevet US 4 780 196 qui concerne le vapocraquage d'hydrocarbures en vue de produire essentiellement des oléfines légères par exemple de l'éthylène et/ou du propylène et également celle décrite dans le brevet US 4 973 777 concernant la conversion thermique du méthane en hydrocarbures de poids moléculaires plus élevés.

Par rapport à ces enseignements de la technique antérieure, des améliorations importantes peuvent encore être apportées en particulier pour faciliter la réalisation du réacteur, pour augmenter sa facilité d'exploitation, pour assurer la sécurité et pour augmenter sa fiabilité.

La présente invention concerne un dispositif de réacteur pour la mise en œuvre de réactions chimiques nécessitant un échange de chaleur, ledit

réacteur, de forme allongée le long d'un axe, comportant à une première extrémité au moins un moyen d'alimentation en au moins un réactif et à une extrémité opposée au moins un moyen d'évacuation des effluents formés, et comportant une pluralité de moyens d'échange de chaleur séparés par au moins une cloison interne, participant au contrôle du temps de séjour du ou des réactifs et à l'augmentation de la surface d'échange de chaleur au sein du réacteur, et des passages pour la circulation du ou des réactifs et/ou des effluents définis entre lesdits moyens d'échange de chaleur et lesdites cloisons internes, caractérisé en ce que le réacteur comporte au moins une enceinte en matériau réfractaire assurant une isolation thermique et contenant les moyens d'échange de chaleur et les cloisons internes et en ce que ladite enceinte est contenue dans une enveloppe de confinement du ou des réactifs et/ou des effluents circulant à l'intérieur dudit réacteur.

15

5

10

Les cloisons internes peuvent être formées d'éléments modulaires.

Les cloisons internes peuvent être formées d'éléments modulaires jointifs ayant une forme adaptée à l'obtention du temps de séjour souhaité au sein du réacteur pour le ou les réactifs et les effluents.

Les cloisons internes peuvent être formées d'éléments modulaires non jointifs ayant une forme adaptée à l'obtention du temps de séjour souhaité au sein du réacteur pour le ou les réactifs et les effluents.

25

20

La section transversale de l'enveloppe de confinement est de forme sensiblement quadrilatérale.

30

Le réacteur peut comporter une coque externe dont la section transversale est sensiblement circulaire et dont le diamètre interne est sensiblement égal à la plus grande dimension de la diagonale externe de l'enveloppe de confinement.

L'enceinte peut être en matériau réfractaire minéral et l'enveloppe de confinement peut être en matériau métallique.

5 L'enceinte peut comporter des moyens de liaison et/ou d'ancrage à l'enveloppe de confinement.

L'enceinte peut être en matériau réfractaire choisi parmi les céramiques poreuses, les céramiques non poreuses, les bétons réfractaires, les bétons alumineux.

L'enceinte peut être ajustée à l'enveloppe de confinement de manière à éviter les bipasses gazeux entre l'extérieur de ladite enceinte et l'intérieur de ladite enveloppe.

15

10

Le réacteur peut comporter des moyens permettant le montage et le démontage des moyens d'échange de chaleur ainsi que des cloisons internes et au moins un moyen permettant un accès à l'intérieur du réacteur.

- L'invention sera mieux comprise par la description de quelques modes de réalisation, donnés à titre purement illustratif mais nullement limitatif qui en sera faite ci-après à l'aide des figures 1 à 4 annexées à la présente description et sur lesquelles :
- 25 La figure 1 montre une section transversale selon la ligne 1-1 de la figure 2 d'un dispositif de réacteur selon l'invention;
  - La figure 2 représente une vue schématique en coupe longitudinale selon la ligne 2-2 de la figure 1 du dispositif de réacteur ;
- La figure 3 montre une section transversale d'une variante d'un dispositif de réacteur de la figure 1 ;
  - La figure 4 représente est un schéma de principe d'un dispositif de réacteur selon l'invention.

Comme représenté sur les figures 1 et 2, le réacteur R, de forme allongée selon un axe longitudinal XX', comprend une enceinte 10 délimitant un volume interne creux V dans lequel sont disposées des moyens d'échange de chaleur 12, en forme de gaines, et des cloisons internes 14.

5

L'enceinte 10 présente, sur ces figures, une section transversale de quadrilatère carré, mais toute autre section peut être envisagée telle qu'une section quadrilatère rectangle ou une section circulaire.

10

Les gaines, qui sont qui sont réalisées en céramiques techniques non poreuses et qui contiennent un brûleur gaz ou une résistance électrique ou un tube de refroidissement qui dans ce cas peut également être en métal, sont disposées sensiblement perpendiculaires à l'axe XX' et sensiblement parallèles les unes aux autres de manière à former des rangées ou nappes de gaines N1, N2, N3 sensiblement parallèles entre elles.

15

C'est entre ces nappes et/ou entre ces nappes et la paroi de l'enceinte 10 que sont disposées les cloisons internes 14 pour permettre le contrôle du temps de séjour et/ou générer une surface d'échange supplémentaire.

Le réacteur comprend, en outre, des orifices 16 permettant l'introduction des réactifs gazeux et des orifices 18 autorisant la sortie des effluents gazeux contenant les produits de la réaction (figure 2).

25

Extérieurement à l'enceinte 10 et autour de celle-ci, est prévue une enveloppe de confinement 20, de préférence métallique, dont le rôle est d'assurer l'étanchéité au gaz du procédé réaction (process gases selon la dénomination anglo-saxonne).

Cette enveloppe a, de préférence, une section sensiblement identique à celle de l'enceinte 10, ici une section de quadrilatère carré, et comporte, dans l'exemple montré, des dimensions internes sensiblement égales aux dimensions externes de l'enceinte 10.

5

L'enceinte 10 comprend une paroi qui est réalisée en matériaux réfractaires haute température ou en céramique dont le but est de réaliser l'isolation thermique du réacteur afin de maintenir la paroi de l'enveloppe de confinement 20 à température acceptable.

10

Avantageusement et cela afin de mieux résister aux pressions régnant dans le volume V de l'enceinte 10, il peut être prévu que les angles vifs de la section quadrilatère de l'enceinte 10 et de l'enveloppe 20 soient arrondis.

15

20

Ainsi, l'enceinte 10 remplit un double rôle, celui d'isolant thermique pour protéger l'enveloppe de confinement externe 20 du réacteur et le rôle de pièce de forme générant l'espace interne nécessaire à sa participation au contrôle de l'écoulement et du temps de séjour des fluides en circulation dans le réacteur.

25

Un mode de réalisation de cette paroi de l'enceinte 10 est basée sur les technologies de revêtement par des bétons réfractaires, tels que ceux notamment employés dans l'industrie du raffinage, comme par exemple dans le craquage catalytique en lit fluide, dit FCC selon les initiales anglosaxonnes désignant ce procédé (Fluid Catalytic Cracking).

30

Le béton pourra être installé avec des techniques d'ancrage voisines de celles employées dans le cas du FCC ou dans les lits fluidisés circulants (ref : RE WOODS and S PATEL Second FCC Forum May15-17 1996 The

Woodlands Texas or Fluidized Bed Combustion Volume 2 ASME). Les ancrages de type V, Bares en S ou Hexmesh pourront être utilisés. On préférera toutefois les ancrages en V qui sont les plus communs pour des épaisseurs de bétons réfractaires de plusieurs centimètres dans des milieux pas ou peu érodants. Le nombre des ancrages sera déterminé au cas par cas sachant que les nouveaux bétons réfractaires sont très stables et ont des coefficients de dilatation très faibles ce qui permet de réduire notablement le nombre d'ancrages.

- On utilisera de préférence des bétons alumineux par exemple de type Secar 70 ou Super Secar 80 ou des matériaux à base de zircone, torine ou alumine. Ce béton alumineux peut être mono-couche ou bi-couche pour améliorer l'isolation thermique. Cette couche pouvant être poreuse mais devant être ajustée sur la paroi métallique pour éviter les bipasses gazeux. Ces matériaux devront pouvoir être employés dans des conditions de température élevée jusqu'à 1500 °C pour certaines applications et de préférence 1200 °C pour les applications de pyrolyses d'hydrocarbures ou voire 1000 °C par exemple en vapocraquage.
- Cette paroi de l'enceinte 10 pourra présenter une perméabilité relative (ou selon un terme équivalent au sens de la présente description une porosité non nulle laissant une possibilité de passage d'un gaz à travers sa structure) à condition d'être de préférence directement au contact de la paroi métallique de l'enveloppe 20 afin d'éviter les bipasses gazeux entre la paroi de l'enveloppe métallique 20 et le matériau réfractaire de ladite paroi de l'enceinte 10.

Différents modes d'applications sont possibles pour les bétons réfractaires.

30 La mise en place pourra être faite de préférence avec du béton coulé vibré.

Dans cette technique, le béton réfractaire est mélangé avec de l'eau suivant les spécifications du fournisseur. Le mélange ainsi obtenu est coulé entre une paroi préalablement équipée des ancrages nécessaires et un moule installé à l'intérieur du réacteur pour définir l'épaisseur de la couche de béton et la forme spécifique de la paroi intérieure. Des vibreurs installés sur la paroi facilitent l'écoulement du béton, l'élimination des poches d'air éventuelles et la densification du béton. Cette technique sera préférée car elle permet la réalisation de formes relativement complexe en paroi interne du réacteur.

10

5

Un système pneumatique permettant la projection pneumatique du réfractaire contre une paroi à revêtir pourra aussi être employé dans le cadre de l'invention. Un mélange préalable béton + eau (5 à 15 % en poids d'eau en général) est d'abord réalisé avant introduction dans le pistolet. Une addition d'eau supplémentaire est ensuite réalisée par des buses distribuée sur le col du pistolet d'application afin de respecter les spécifications du fournisseur de béton.

20

25

15

Suivant les contraintes géométriques liées au procédé mis en œuvre (temps de séjours) on pourra opter pour une application pneumatique du béton, pour une application manuelle ou pour du béton coulé vibré.

envisagé de se dispenser de la paroi portant les moyens d'ancrage et d'utiliser, en lieu et place un moule complémentaire, qui sera retiré simultanément avec le moule disposé à l'intérieur du réacteur, après la fin des opérations.

Bien entendu et cela sans sortir du cadre de l'invention, il peut être

Dans tous les cas, on maintiendra une couche de béton d'épaisseur relativement faible mais suffisante pour assurer l'isolation thermique tout en assurant l'intégrité de ce dernier.

- Sans que cela ne soit considérer comme limitatif cette épaisseur est habituellement d'environ 5 à environ 100 centimètres, souvent d'environ 10 à environ 60 centimètres et le plus souvent d'environ 10 à 20 centimètres.
- Des ancrages, par exemple métalliques, seront réalisés pour maintenir le béton à proximité de la paroi métallique de l'enveloppe 20 par exemple à une distance relativement constante de la paroi de l'enceinte 10 ou directement au contact de celle-ci.
- Dans tous les cas, seule la couche de béton est appliquée dans une première étape, l'espace disponible dans le réacteur lors de cette étape permet cette application et son contrôle par un opérateur intervenant dans le réacteur lui-même.
- La paroi de l'enveloppe 20 a habituellement une épaisseur d'environ 0,5 à environ 50 centimètres, souvent d'environ 1 à environ 20 centimètres et le plus souvent d'environ 2 à environ 10 centimètres.
- Après mise en place du béton, les cloisons internes 14 sont installées, par exemple par une ouverture pratiquement totale d'une des faces du réacteur ou par un trou d'homme.

30

Ces cloisons internes se présentent, par exemple, comme des piles monobloc ou comme des assemblages de briques en matériaux réfractaires. Elles sont soit posées simplement sur la sole béton du réacteur, soit mise en position et bloquées en position par un clavetage ou

tout autre moyen équivalent mis en place par l'opérateur. Elles peuvent être jointives ou non jointives.

Les matériaux utilisés pour ces cloisons internes peuvent être de même nature que les matériaux utilisés pour la réalisation de la paroi de l'enceinte 10 mais on choisira de préférence des matériaux ayant une bonne conductivité thermique comme le carbure de silicium (SiC) qui permettra de réaliser une homogénéisation thermique du réacteur et limitera les risques de profils de conversion dans le réacteur.

10

5

Ces cloisons internes 14 peuvent être dans le cadre de l'invention réalisées en tous matériaux réfractaires connus (par exemple bétons réfractaire, SiC, Alumine, Mulite).

15 Ces cloisons internes 14 sont modulaires afin qu'un opérateur puisse les mettre ou les extraire et, dans ce dernier cas, puisse ainsi libérer tout ou partie du volume V du réacteur permettant ainsi l'entrée de cet opérateur à l'intérieur dudit réacteur pour assurer sa maintenance, notamment pour assurer la maintenance de la paroi de l'enceinte 10.

20

25

30

La mise en place des moyens d'échange de chaleur 12 s'effectue habituellement par des brides supérieures après installation de la paroi de l'enceinte 10 et des cloisons 14. Ces moyens d'échange de chaleur installés verticalement en partie haute du réacteur tel que schématisé sur la figure 1, pourraient être installés également horizontalement ou verticalement dans la partie basse du réacteur dans un autre mode de installer organisation astucieuse est de réalisation. Une les alternativement d'un coté et de l'autre (tête bêche) afin d'augmenter la densité de chauffe et donc de diminuer le temps de séjour dans certaines applications (non schématisé sur les figures).

10

15

20

À titre d'exemple, on utilise un réacteur horizontal à refroidissement indirect, de longueur totale utile 25 m et de section carrée de 2,5 mètres de coté dont la configuration est similaire à celle schématiquement représentée sur la figure 1.

Dans un premier temps, on réalise la mise en place de la paroi en béton réfractaire de l'enceinte 10 sur la paroi de l'enveloppe 20 en respectant la procédure d'application du béton coulé vibré. Cette paroi en béton réfractaire de l'enceinte 10 comporte en face interne des alvéoles hémicylindriques destinées à réserver le volume occupé par les organes de chauffage ou de refroidissement.

Après mise en place de la paroi de l'enceinte 10, la pose des piles centrales est effectuée pour générer les cloisons internes 14, qui sont posées sur la sole du réacteur et sont constituées de briques élémentaires en carbure de silicium assemblées entre elles à l'intérieur du réacteur par l'opérateur.

Le chauffage du réacteur est assuré par des brûleurs, dit brûleurs radiants, comprenant une gaine chauffante en carbure de silicium et une tête de combustion. Ces derniers, au nombre de 180 éléments chauffants disposés verticalement, sont introduits par des brides supérieures sans intervention à l'intérieur du réacteur.

Un espace annulaire permettant la circulation du gaz réactif est généré entre les brûleurs et les parois du réacteur, l'épaisseur de cet espace annulaire est de 3 centimètres.

Les cinq derniers mètres du réacteur sont équipés par des tubes de refroidissement permettant un refroidissement rapide du gaz réactif avant la sortie du réacteur.

La charge préchauffée à 750°C est introduite par les orifices d'entré 16, un profil thermique est ensuite imposé dans le réacteur par une régulation

comprenant plusieurs zones régulées par l'intermédiaire de thermocouples disposés dans les espaces où circule la charge.

En sortie de la zone de chauffe la charge est portée à une température de 930 °C afin d'obtenir une conversion de 90 %.

- Dans la seconde partie du réacteur (les cinq derniers mètres) la charge est refroidie aux environs de 600 °C par des tubes doubles enveloppes permettant l'obtention de vapeur haute pression. La partie échangeur de trempe classiquement utilisée en vapocraquage est, dans le cas présent, directement introduite dans le réacteur.
- La charge est constituée d'éthane dilué avec de la vapeur d'eau suivant un ratio massique eau sur hydrocarbures de 0,3. Le débit gazeux total dans le réacteur est de 87000 t/an. Dans ces conditions la conversion en sortie réacteur, calculée en utilisant un modèle intégrant les transferts thermiques et une cinétique corrélée sur les résultats d'un pilote de petite taille basé sur la même technologie, est de 90%.

On se reporte maintenant à la figure 3, où on a représenté le cas particulier de la réalisation d'un dispositif selon l'invention comportant une coque externe 22, de préférence métallique, pouvant être nécessaire pour des fonctionnements à plus haute pression dans le procédé que l'on souhaite mettre en œuvre (supérieure à 2 bars absolus par exemple).

Cette coque présente préférentiellement une section cylindrique circulaire dont le diamètre est sensiblement égale à la plus grande dimension de l'enveloppe 20 et délimite une espace libre 24 compris entre ladite coque et ladite enveloppe.

25

30

La figure 4 est un schéma de principe d'un dispositif entrant dans le cadre de l'invention comprenant un échangeur de chaleur 26 dans lequel les gaz chauds issus du réacteur R sont refroidis à une température

admissible par des éléments en acier au carbone, c'est-à-dire habituellement inférieure à environ 400 °C et qui montre un mode de réalisation de l'équilibrage en pression.

L'espace 24 généré par la paroi de l'enveloppe 10 et celle de la coque externe 22 est connecté par une ligne 28 directement, soit en aval dans le cas schématisé sur la figure 4, soit en amont du réacteur pour une autre application dans une zone où les réactifs sont refroidis par exemple par un échangeur de chaleur 26 à une température admissible par l'acier carbone soit 400 °C maximum. Cette ligne 28 n'est pas destinée à assurer un balayage continu de la zone 24 mais elle permet d'assurer l'équilibrage en pression en continu dans le cas où la paroi de l'enveloppe 20 n'a pas été calculée pour supporter la pression du procédé et les variations de pression potentielle de la ligne 30 du procédé (process).

15

20

La présente invention concerne également l'utilisation du dispositif de l'invention pour la mise en œuvre de la pyrolyse thermique d'une charge d'hydrocarbures comprise dans le groupe des charges hydrocarbonées contenant principalement de l'éthane, et des charges hydrocarbonées formées principalement par du naphta.

Elle concerne aussi l'utilisation du dispositif de l'invention pour la mise en œuvre d'une réaction de déshydrogénation d'une charge hydrocarbonée contenant principalement des hydrocarbures saturés.

25

30

Elle concerne encore l'utilisation du dispositif de l'invention pour la mise en œuvre d'une réaction de déshydrogénation d'une charge hydrocarbonée choisie dans le groupe formé par les charges hydrocarbonées contenant principalement du propane et les charges hydrocarbonées contenant principalement de l'éthylbenzène.

Elle concerne également l'utilisation du dispositif de l'invention pour la mise en œuvre d'une réaction de craquage thermique d'une charge contenant de l'hydrogène sulfuré et le plus souvent contenant principalement de l'H<sub>2</sub>S.

Au sens de la présente description le terme contenant principalement signifie que la charge contient en poids au moins 50 % du composé hydrocarboné mentionné ou de la coupe d'hydrocarbures mentionnée.

10

#### **REVENDICATIONS**

1. Dispositif de réacteur (R) pour la mise en œuvre de réactions chimiques nécessitant un échange de chaleur, ledit réacteur, de forme allongée le long d'un axe (XX'), comportant à une première extrémité au moins un moyen d'alimentation (16) en au moins un réactif et à une extrémité opposée au moins un moyen d'évacuation (18) des effluents formés, et comportant une pluralité de moyens d'échange de chaleur (12) séparés par au moins une cloison interne (14), participant au contrôle du temps de séjour du ou des réactifs et à l'augmentation de la surface d'échange de chaleur au sein du réacteur, et des passages pour la circulation du ou des réactifs et/ou des effluents définis entre lesdits moyens d'échange de chaleur et lesdites cloisons internes, caractérisé en ce que le réacteur (R) comporte au moins une enceinte (10) en matériau réfractaire assurant une isolation thermique et contenant les moyens d'échange de chaleur (12) et les cloisons internes (14) et en ce que ladite enceinte est contenue dans une enveloppe de confinement (20) du ou des réactifs et/ou des effluents circulant à l'intérieur dudit réacteur.

10

15

25

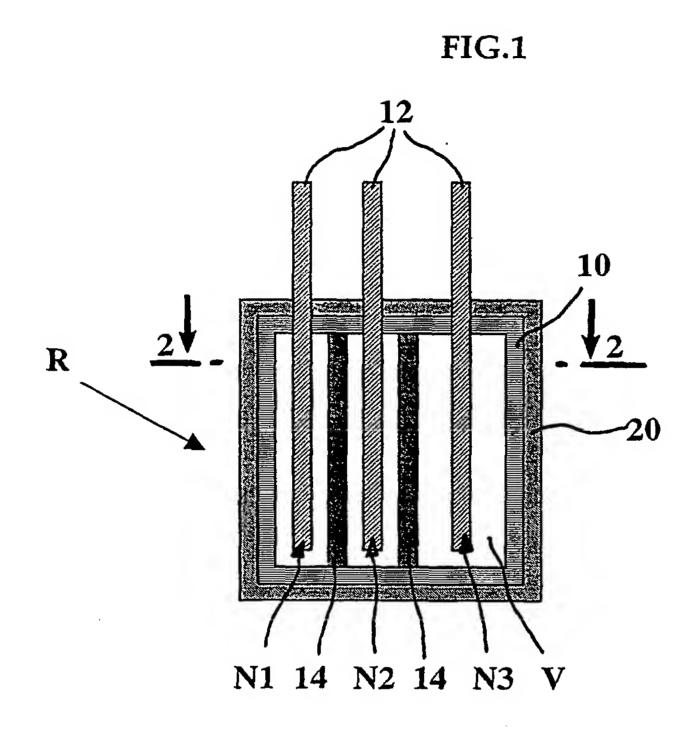
30

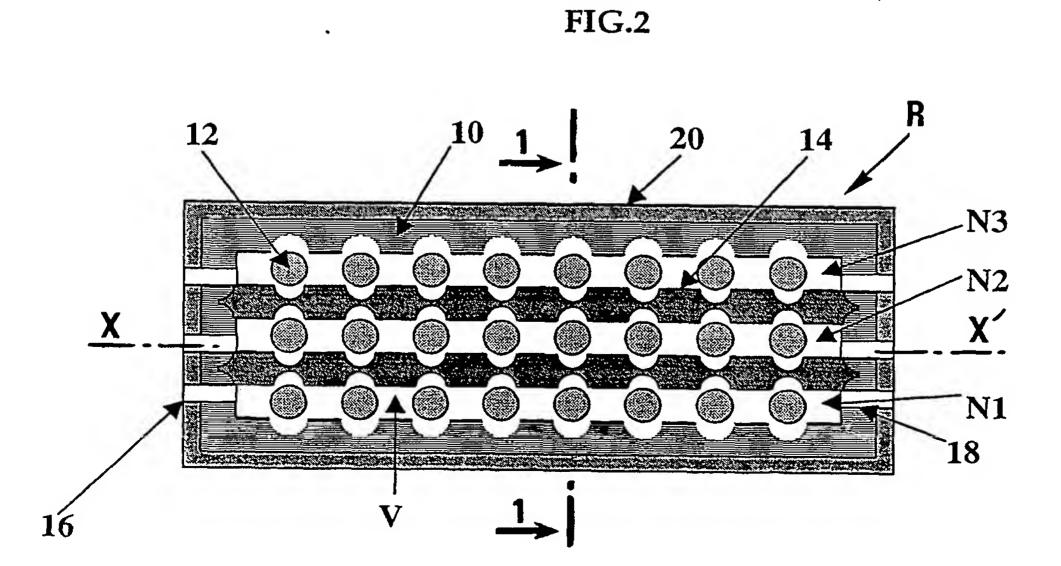
- 20 2. Dispositif selon la revendication 1 dans lequel les cloisons internes (14) sont formées d'éléments modulaires.
  - 3. Dispositif selon la revendication 2 dans lequel les cloisons internes (14) sont formées d'éléments modulaires jointifs ayant une forme adaptée à l'obtention du temps de séjour souhaité au sein du réacteur pour le ou les réactifs et les effluents.
  - 4. Dispositif selon la revendication 2 dans lequel les cloisons internes (14) sont formées d'éléments modulaires non jointifs ayant une forme adaptée à l'obtention du temps de séjour souhaité au sein du réacteur pour le ou les réactifs et les effluents.
  - 5. Dispositif selon lune des revendications 1 à 4 dans lequel la section transversale de l'enveloppe de confinement (20) est de forme sensiblement quadrilatérale.

- 6. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce qu'il comporte une coque externe (22) dont la section transversale est sensiblement circulaire et dont le diamètre interne est sensiblement égal à la plus grande dimension de la diagonale externe de l'enveloppe de confinement (20).
- 7. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 6 dans lequel l'enceinte (10) est en matériau réfractaire minéral et l'enveloppe de confinement (20) est en matériau métallique.
  - 8. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 7 dans lequel l'enceinte (10) comporte des moyens de liaison et/ou d'ancrage à l'enveloppe de confinement (20).
  - 9. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 8 dans lequel l'enceinte (10) est en matériau réfractaire choisi parmi les céramiques poreuses, les céramiques non poreuses, les bétons réfractaires, les bétons alumineux.
- 10. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 9 dans lequel l'enceinte (10) est ajustée à l'enveloppe de confinement (20) de manière à éviter les bipasses gazeux entre l'extérieur de ladite enceinte et l'intérieur de ladite enveloppe.
- 11. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 10, caractérisé en ce qu'il comporte des moyens permettant le montage et le démontage des moyens d'échange de chaleur (12) ainsi que des cloisons internes (14) et au moins un moyen permettant un accès à l'intérieur du réacteur (R).
- 12. Utilisation du dispositif selon l'une des revendications 1 à 11 pour la mise en œuvre de la pyrolyse thermique d'une charge d'hydrocarbures comprise dans le groupe des charges hydrocarbonée contenant principalement de l'éthane, et des charges hydrocarbonées formées principalement par du naphta.

- 13. Utilisation du dispositif selon l'une des revendications 1 à 11 pour la mise en œuvre d'une réaction de déshydrogénation d'une charge hydrocarbonée contenant principalement des hydrocarbures saturés.
- 14. Utilisation du dispositif selon l'une des revendications 1 à 11 pour la mise en œuvre d'une réaction de déshydrogénation d'une charge hydrocarbonée choisi dans le groupe formé par les charges hydrocarbonées contenant principalement du propane et par les charges hydrocarbonées contenant principalement de l'éthylbenzène.

15. Utilisation du dispositif selon l'une des revendications 1 à 11 pour la mise en œuvre d'une réaction de craquage thermique d'une charge contenant principalement de l'hydrogène sulfuré.





2/2

FIG.3

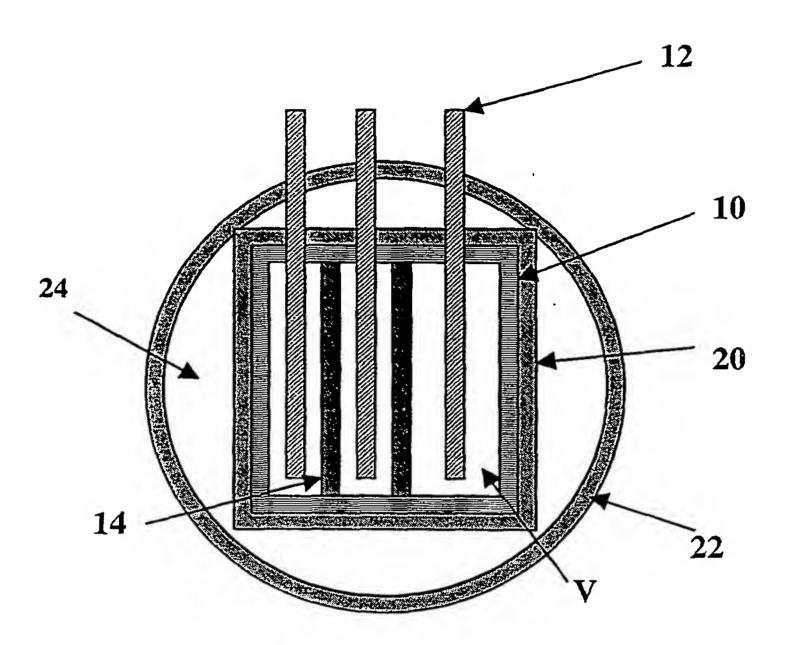
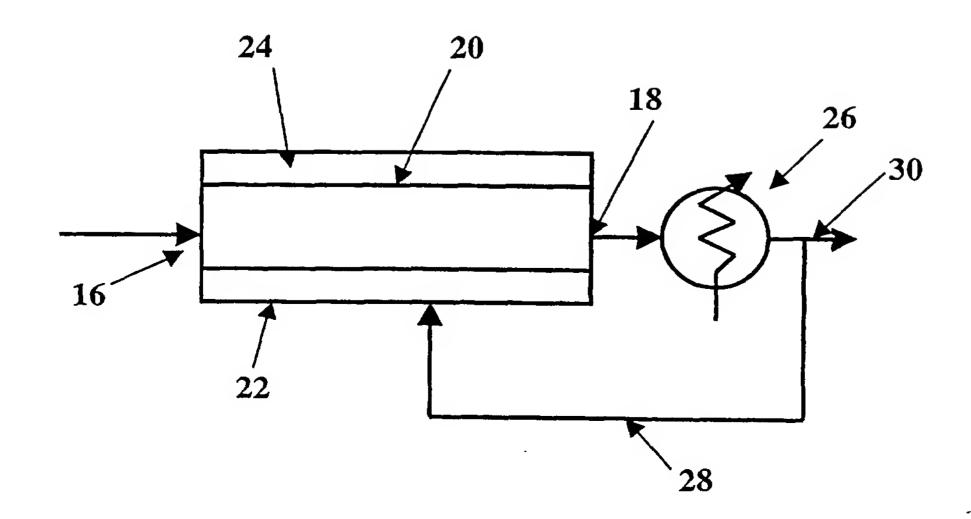


FIG. 4









Code de la propriété intellectuelle - Livre VI

#### **DÉPARTEMENT DES BREVETS**

26 bis, rue de Saint Pétersbourg 75800 Paris Cedex 08

Téléphone: 01 53 04 53 04 Télécopie: 01 42 93 59 30

#### DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 1../1..

(Si le demandeur n'est pas l'inventeur ou l'unique inventeur)

elephone : 01 93 04	1 55 04 Telecopie : 01 42 95 59 50		Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire	DB 113 W /26089
Vos référence (facultatif)	s pour ce dossier	AR/CLN		
N° D'ENREGIS	TREMENT NATIONAL	Octo	22191	
DISPOSITIF I		TANT UNE E	n) ENCEINTE EN MATERIAU REFRACTAIRE ET UNE E DE REACTIONS CHIMIQUES NECESSITANT UN ECI	
LE(S) DEMAN INSTITUT FR	DEUR(S): RANCAIS DU PETROLE			
DESIGNE(NT) utilisez un for Nom	EN TANT QU'INVENTEUR mulaire identique et numé	(S): (Indique rotez chaque NOUGIER	ez en haut à droite «Page N° 1/1» S'il y a plus de tr page en indiquant le nombre total de pages).	rois inventeurs,
Prénoms		Luc	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
Adresse	Rue	31 Côte de	l'Hormet ·	
** <del>***********************************</del>	Code postal et ville	69110	Sainte Foy Les Lyons	
Société d'appar	tenance (facultatif)			
Nom		LENGLET		
Prénoms		Eric		
Adresse	Rue	62 bouleva	rd Baron du Marais	
	Code postal et ville	69110	Sainte Foy Les Lyons	
Société d'appar	tenance (facultatif)			
Nom				
Prénoms	·			
Adresse	Rue		•	
	Code postal et ville			·
Société d'appar	tenance (facultatif)			
Alfred ELMA	IANDEUR(S) ATAIRE sé du signataire LEH, tement Brevets	2		

La loi n°78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique, aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.





#### RAPPORT DE RECHERCHE **PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications déposées avant le commencement de la recherche N° d'enregistrement national

FA 600236 FR 0103191

Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties perfinentes  ( US 5 853 682 A (BUSSON CHRISTIAN, NIETSCH THOMAS ET AL) 29 décembre 1998 (1998-12-29) 4 * colonne 7, ligne 57 - colonne 9, ligne 15 * 4 * figures 2,5 *  0,X US 5 554 347 A (BUSSON CHRISTIAN, DELHOMME HENRI, GOLLION LAURE, CASSAGNE JEAN PIERRE 1) 10 septembre 1996 (1996-09-10) 4 * colonne 8, ligne 22 - ligne 39 * 5 * colonne 11, ligne 28 - colonne 12, ligne 14 * 5 * figures 18,1C *  US 6 027 635 A (BUSSON CHRISTIAN, DELHOMME HENRI ) 22 février 2000 (2000-02-22) 5 * colonne 3, ligne 50 - colonne 4, ligne 19 * 5 * colonne 4, ligne 54 - colonne 5, ligne 35 * 7 * figure 1 *  DOMANNES TECHNIQUES RECHERCHES (INCLUT, BOIJ) COTC COTB	DOCL	MENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS	Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
THOMAS ET AL) 29 décembre 1998 (1998-12-29)     * colonne 7, ligne 57 - colonne 9, ligne 15 *     * figures 2,5 *  0,X US 5 554 347 A (BUSSON CHRISTIAN, DELHOMME HENRI, GOLLION LAURE, CASSAGNE JEAN PIERRE) 10 septembre 1996 (1996-09-10)     * colonne 8, ligne 22 - ligne 39 *     * colonne 9, ligne 5 - ligne 41 *     * colonne 11, ligne 28 - colonne 12, ligne 14 *     * figures 18,1C *  US 6 027 635 A (BUSSON CHRISTIAN, DELHOMME HENRI ) 22 février 2000 (2000-02-22)     * colonne 3, ligne 50 - colonne 4, ligne 19 *     * colonne 4, ligne 54 - colonne 5, ligne 35 *     * figure 1 *  DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (INT.L.T.)  BOLJ 12/00 C07C4/04 C07C7/32  BOLJ 12/00 C07C4/04 C07C7/4/04 CO7C7/4/04 CO7C4	Catégorie	·		
HENRI, GOLLION LAURE, CASSAGNE JEAN PIERRE 12,13 ) 10 septembre 1996 (1996-09-10) * colonne 8, ligne 22 - ligne 39 * * colonne 9, ligne 5 - ligne 41 * * colonne 11, ligne 28 - colonne 12, ligne 14 * * figures 1B,1C *  US 6 027 635 A (BUSSON CHRISTIAN, DELHOMME HENRI ) 22 février 2000 (2000-02-22) * colonne 3, ligne 50 - colonne 4, ligne 19 * * colonne 4, ligne 54 - colonne 5, ligne 35 * * figure 1 *  DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (INT.CL.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T.T	X A	THOMAS ET AL) 29 décembre 1998 (1998-12-29) * colonne 7, ligne 57 - colonne 9, ligne 15 *	7-9	B01J12/00 C07C4/04
* colonne 8, ligne 22 - ligne 39 *     * colonne 9, ligne 5 - ligne 41 *     * colonne 11, ligne 28 - colonne 12, ligne 14 *     * figures 18,1C *  US 6 027 635 A (BUSSON CHRISTIAN,DELHOMME HENRI ) 22 février 2000 (2000-02-22)     * colonne 3, ligne 50 - colonne 4, ligne 19 *     * colonne 4, ligne 54 - colonne 5, ligne 35 *     * figure 1 *  DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (Int.CL.7)  BOIJ C106 C07C C01B	D,X	HENRI, GOLLION LAURE, CASSAGNE JEAN PIERRE		·
HENRI ) 22 février 2000 (2000-02-22) * colonne 3, ligne 50 - colonne 4, ligne 19 * * colonne 4, ligne 54 - colonne 5, ligne 35 * * figure 1 *   BONAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (INT.CL.7)  BOIJ C10G C07C C01B	A	<pre>* colonne 8, ligne 22 - ligne 39 * * colonne 9, ligne 5 - ligne 41 * * colonne 11, ligne 28 - colonne 12, ligne 14 *</pre>	7	-
35 * * figure 1 *   B01J C10G C07C C01B	A	HENRI ) 22 février 2000 (2000-02-22) * colonne 3, ligne 50 - colonne 4, ligne	1 ' ' '	
CO1B		35 *		BO1J C10G
Date of sub-propert de la cocheche				•
Date d'achèvement de la repherche				·
Date d'achèvement de la recherche				
12 décembre 2001 Vlassis, M		Date d'achèvement de la recherche		Examinateur

CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS

X : particulièrement pertinent à lui seul
Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie
A : arrière-plan technologique
O : divulgation non-écrite
P : document intercalaire

T: théorie ou principe à la base de l'invention

E: document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure.

D: cité dans la demande

L : cité pour d'autres raisons

...... & : membre de la même famille, document correspondant

#### ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 0103191 FA 600236

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus. Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date d12-12-2001 Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet au rapport de reche		Date de publication		Membre(s) d famille de brev		Date de publication
US 5853682	A	29-12-1998	FR CA CN DE DE EP	2745806 2199056 1171288 69702154 69702154 0794150	A1 A D1 T2	12-09-1997 08-09-1997 28-01-1998 06-07-2000 28-09-2000 10-09-1997
US 5554347	A	10-09-1996	ES FR AU AU CA DE	2150743 2715583 696504 1149595 2141712 69505857	A1 B2 A A1	01-12-2000 04-08-1995 10-09-1998 10-08-1995 03-08-1995 17-12-1998
			DE EP JP NO RU	0666104		15-04-1999 09-08-1995 28-11-1995 03-08-1995 20-09-1999
US 6027635	Α	22-02-2000	FR DE DE EP	2743007 69609301 69609301 0781828	D1 T2	04-07-1997 17-08-2000 26-04-2001 02-07-1997

